

Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/000431

International filing date: 07 January 2005 (07.01.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: US
Number: 60/535,806
Filing date: 13 January 2004 (13.01.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 17 March 2005 (17.03.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

24. 2. 2005

PA 1250464

THE UNITED STATES OF AMERICA

TO ALL TO WHOM THESE PRESENTS SHALL COME:

UNITED STATES DEPARTMENT OF COMMERCE

United States Patent and Trademark Office

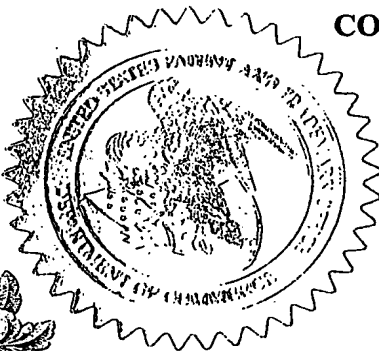
November 23, 2004

THIS IS TO CERTIFY THAT ANNEXED HERETO IS A TRUE COPY FROM THE RECORDS OF THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE OF THOSE PAPERS OF THE BELOW IDENTIFIED PATENT APPLICATION THAT MET THE REQUIREMENTS TO BE GRANTED A FILING DATE UNDER 35 USC 111.

APPLICATION NUMBER: 60/535,806

FILING DATE: January 13, 2004

By Authority of the
COMMISSIONER OF PATENTS AND TRADEMARKS



Louise Wallace
TRUDIE WALLACE
Certifying Officer

PROVISIONAL APPLICATION FOR PATENT COVER SHEET

This is a request for filing a PROVISIONAL APPLICATION FOR PATENT under 37 CFR 1.53(c).

INVENTOR(S)			
Given Name (first and middle [if any])	Family Name or Surname	Residence (City and either State or Foreign Country)	
Hiroshi TSUZUKI		Toyama	Japan
Hisao KOGOI		Toyama	Japan
Jun TANAKA		Chiba	Japan
<input type="checkbox"/> Additional inventors are being named on the _____ separately numbered sheet(s) attached hereto			
TITLE OF THE INVENTION (500 characters max) INORGANIC POWDER, RESIN COMPOSITION FILLED WITH THE POWDER AND USE THEREOF			
CORRESPONDENCE ADDRESS Direct all correspondence to the address for SUGHRUE MION, PLLC filed under the Customer Number listed below: WASHINGTON OFFICE 23373 CUSTOMER NUMBER			
ENCLOSED APPLICATION PARTS (check all that apply)			
Specification (Japanese Language) <input checked="" type="checkbox"/> Number of Pages <u>nineteen (19)</u> <input type="checkbox"/> CD(s), Number _____ <input type="checkbox"/> Drawing(s) Number of Sheets _____ <input type="checkbox"/> Other (specify) _____ <input type="checkbox"/> Application Data Sheet. See 37 CFR 1.76			
METHOD OF PAYMENT OF FILING FEES FOR THIS PROVISIONAL APPLICATION FOR PATENT			
<input type="checkbox"/> Applicant claims small entity status. See 37 CFR 1.27. <input checked="" type="checkbox"/> A check or money order is enclosed to cover the Provisional filing fees. The USPTO is directed and authorized to charge all required fees, except for the Issue Fee and the Publication Fee, to Deposit Account No. 19-4880. Please also credit any overpayments to said Deposit Account. <input type="checkbox"/> The USPTO is hereby authorized to charge the Provisional filing fees to our Deposit Account No. 19-4880. The USPTO is directed and authorized to charge all required fees, except for the Issue Fee and the Publication Fee, to Deposit Account No. 19-4880. Please also credit any overpayments to said Deposit Account.			<div style="border: 1px solid black; padding: 5px;"> FILING FEE AMOUNT (\$) \$160.00 </div>
The invention was made by an agency of the United States Government or under a contract with an agency of the United States Government. <input checked="" type="checkbox"/> No. <input type="checkbox"/> Yes, the name of the U.S. Government agency and the Government contract number are: _____			

Respectfully submitted,

SIGNATURE Sheldon I. LandsmanDATE January 13, 2004TYPED or PRINTED NAME Sheldon I. LandsmanREGISTRATION NO. 25,430TELEPHONE NO. (202) 293-7060DOCKET NO. P79390**USE ONLY FOR FILING A PROVISIONAL APPLICATION FOR PATENT**

【書類名】 明細書

【発明の名称】 無機質粉体、およびこれを充填した樹脂組成物とその用途

【技術分野】

【0001】

本発明は、電気絶縁性と放熱性能が要求される電子部品の回路基板等の用途において、放熱部材として有用な熱伝導性を有する樹脂組成物とその用途、及び樹脂組成物に熱伝導性フィラーとして充填される高熱伝導性を有する無機質粉体に関するものである。

【背景技術】

【0002】

近年、半導体素子等の電子部品を搭載した回路基板は、家電製品や自動車の電装用等様々な分野での電子制御装置に用いられているが、装置小型化への急速な進展に伴い回路基板への高集積化と高機能化要求が益々高まっている。その結果、回路上等で局所的に発生する発熱量は増大傾向にある。発熱、蓄熱は回路等の耐久性に対し悪影響を及ぼすため、回路基板には電気絶縁性等の電氣的信頼性に加え、より高い放熱性能が要求され、現在、回路基板本体や封止材、及び絶縁接着層等の部材に至るまで、放熱性能の改良と伝熱・放熱方法の検討がなされている。

【0003】

放熱方法は、熱伝導性が高い金属製フィンや放熱板と、回路基板等を接して組み付けることで熱を伝達、放散させる方法が一般的である。しかし、両者の接点部で通電、短絡が発生すると回路が破壊されるため、両者間には電気絶縁性が高い公知の有機重合体組成物等からなる樹脂組成物層を挟み絶縁することが一般的である。しかし、有機重合体組成物のみでは一般的に熱伝導率が低く、放熱部材としての性能は低い。

【0004】

有機重合体組成物等からなる樹脂組成物に熱伝導性を付加する方法としては、従来から高熱伝導性を有する無機質粉体を熱伝導性フィラーとして充填する技術が知られている

。尚、無機質粉体は難燃性、電気絶縁性等の機能を付加するフィラーにもなる。ここで、特に球状の無機質粉体は充填性及び流動性の点で優れることから、回路基板の放熱部材、半導体封止材の充填材料として既に多く実用されている。例えば、熱伝導率が高い球状酸化アルミニウム粉体は放熱フィラーとして使用され、球状シリカ粉体はその高い純度から半導体封止剤フィラーとして使用されている。

【0005】

球状無機質粉体を得る方法の例としては、原料となる無機質粉体、又はそのスラリーを高温火炎中に導入して熔融状態にし、表面張力により球状化する技術が知られている（例えば、特許文献1）。或いは、原料として金属が用いられることもあり、この場合には金属の高温酸化と熔融球状化が同時並行に起きることになる（例えば、特許文献2）。

【0006】

球状状態が良好な、いわゆる高球形度の球状無機質粉体は、高充填性や、流動性の指標である樹脂コンパウンドに充填した時の粘度（以降、樹脂コンパウンド粘度と称する）が低いため、空隙等の樹脂欠陥発生の可能性が少ない。この点が強みとなり、高価であっても樹脂コンパウンドの放熱性能向上が期待できるフィラーとして重用される。ところが、比較的安価な、低球形度或いは破碎粉のように角がある無機質粉体は、樹脂コンパウンド粘度が比較的高くなり、特にコンパウンドが熱硬化、高粘度化する際の流動不良が著しく樹脂欠陥が発生し易い。樹脂欠陥が多く存在すると電氣的信頼性、耐電圧特性の指標となる絶縁破壊電圧に対する強度（以降、絶縁破壊強度と称する）が低下する傾向があった。

【0007】

又、無機質粉体は一般的に表面が親水性であるため、コンパウンドとなるエポキシ樹脂に代表される有機重合体組成物やシリコン重合体組成物との親和性が低く、特に球状無機質粉体は表面が平滑であるため結合性、接着性が弱い。そのため、界面破壊が生じ易く絶縁破壊強度は低下し易い。このような場合においても、シラン系カップリング剤等で粉体を表面処理し疎水化することで、樹脂組成物との接着性を向上させる技術が一般的に知られ

ている。(例えば、特許文献3、特許文献4、非特許文献1)

【0008】

回路基板の放熱部材に用いられる樹脂組成物には、有機重合組成物等が本来有する柔軟性、耐電圧特性を維持しつつ、高放熱性能を有することが求められる。高放熱性能を得るために熱伝導性の高い無機質粉体を高充填すると、界面破壊や樹脂欠陥の発生による耐電圧特性の低下、柔軟性低下につながることから、従来技術では流動性が良く(即ち樹脂コンパウンド粘度が低く)、高充填性を有する、高価な高球形度の球状無機質粉体を選択され重用されている。更に、分級・混合処理による特殊な粒度分布や粒子性状への制御、表面処理等の追加加工による接着性等の改善を実施した上で使用する技術が知られている(例えば、特許文献5、特許文献6)。

【0009】

即ち、言い換えるならば従来技術では、比較的低コストで入手、製造できる破碎粉や低球形度の粉体等、流動性が比較的良くない(即ち樹脂コンパウンド粘度が高い)無機質粉体は高充填が難しく、更に樹脂欠陥等の発生により耐電圧特性が著しく低下するため使用することができず、その結果、放熱性能と高耐電圧特性を有する樹脂組成物を得ることはできなかった。

【特許文献1】

特開2001-19425号公報

【特許文献2】

特開平5-193908号公報

【特許文献3】

特開平5-335446号公報

【特許文献4】

特開2001-240771号公報

【特許文献5】

特開2001-139725号公報

【特許文献6】

特開2003-137627号公報

【非特許文献1】

日本ユニカー株式会社製NUCシランカップリング剤カタログ

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

本発明では、樹脂組成物中に放熱性能を向上させ得るほどに高充填でき、なお且つ、高耐電圧特性を有する薄膜状絶縁性樹脂組成物（以降、薄膜樹脂シートと称する）の成膜を可能にする熱伝導性無機質粉体を提供し、電気絶縁性と放熱性能が要求される回路基板等の放熱部材として用いることが可能な樹脂組成物を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0011】

本発明は、上述のような状況を鑑みてなされたものであり、ある特定の粒度分布を有し、さらに好ましくは予め表面疎水化処理が施された、熱伝導性無機質粉体を用いることにより、樹脂コンパウンド粘度が高くなるような低球形度の粉体であるにもかかわらず樹脂組成物に高充填でき、高熱伝導性を発現し、且つ、薄膜樹脂シート成膜時において高い絶縁破壊強度が得られることを見出し本発明に至った。

【0012】

即ち、本発明は、以下の各実施態様からなる。

(1) 多峰性の頻度粒度分布を有し、少なくとも $0.2 \sim 2 \mu\text{m}$ と $2 \sim 63 \mu\text{m}$ の粒度域に極大径を含有する粉体である無機質粉体。

(2) 最大粒子径が $63 \mu\text{m}$ 以下で、平均粒子径が $4 \sim 30 \mu\text{m}$ の範囲にあり、最頻径が $2 \sim 35 \mu\text{m}$ の範囲にある(1)に記載の無機質粉体。

(3) 粒子径が $2\mu\text{m}$ 未満の粒子の割合が $0\sim 20$ 質量%で、粒子径が $2\mu\text{m}$ 未満の粒子の最頻径が $0.25\sim 1.5\mu\text{m}$ の範囲にある(1)または(2)に記載の無機質粉体。

(4) 粒子径が $8\mu\text{m}$ 以上の粒子の割合が $44\sim 90$ 質量%である(1)乃至(3)のいずれか1項に記載の無機質粉体。

(5) 粒度域 $2\sim 8\mu\text{m}$ の粒子の割合が $32\sim 45$ 質量%である(1)乃至(4)のいずれか1項に記載の無機質粉体。

(6) 球形度が $0.68\sim 0.95$ で、球状化率が $0.63\sim 0.95$ である(1)乃至(5)のいずれか1項に記載の無機質粉体。

(7) 粒子径が $2\mu\text{m}$ 未満の粒子の球形度が $0.5\sim 0.95$ 、球状化率が $0\sim 0.9$ である(1)乃至(6)のいずれか1項に記載の無機質粉体。

(8) 粒子径が $8\mu\text{m}$ 以上の粒子の球形度が $0.7\sim 0.9$ 、球状化率が $0.7\sim 0.9$ であることを特徴とする(1)乃至(7)のいずれか1項に記載の無機質粉体。

(9) 無機質粉体の熱伝導性が、単結晶時において $30\text{W}/\text{m}\cdot\text{K}$ 以上である(1)乃至(8)に記載の無機質粉体。

(10) 無機質粉体の α アルミナ結晶相分率が、 $30\sim 70$ 質量%の範囲にある(1)乃至(9)に記載の無機質粉体。

(11) $2\mu\text{m}$ 未満の粒子の α アルミナ結晶相分率が、 $90\sim 99$ 質量%の範囲にある(1)乃至(10)のいずれか1項に記載の無機質粉体。

(12) $8\mu\text{m}$ 以上の粒子の α アルミナ結晶相分率が、 $30\sim 60$ 質量%の範囲にある(1)乃至(11)のいずれか1項に記載の無機質粉体。

(13) シラン系カップリング剤やチタネート系カップリング剤などの表面処理剤によって表面疎水化処理されている(1)乃至(12)のいずれか1項に記載の無機質粉体。

(14) (1)乃至(13)のいずれか1項に記載の無機質粉体が充填されている樹脂組成物。

(15) 無機質粉体が $50\sim 90$ 質量%充填されている(14)に記載の樹脂組成物。

(16) 樹脂組成物が、膜厚40 μ m以上90 μ m以下の薄膜状絶縁性樹脂組成物とした場合に、JIS C2110に規定された絶縁破壊電圧試験によって測定される絶縁破壊強度が39kV/mm以上である(14)または(15)に記載の樹脂組成物。

(17) (14)乃至(16)のいずれか1項に記載の樹脂組成物を使用した自動車搭載用回路基板。

(18) (14)乃至(16)のいずれか1項に記載の樹脂組成物を使用した電子機器搭載用回路基板。

(19) (14)乃至(16)のいずれか1項に記載の樹脂組成物を使用した電子機器内部設置型の放熱用部材。

(20) (14)乃至(16)のいずれか1項に記載の樹脂組成物を使用した電子部品用の放熱部材。

(21) 放熱部材が、絶縁接着層を兼ねることができるシート状部材である(20)に記載の電子部品用の放熱部材。

(22) (14)乃至(16)のいずれか1項に記載の樹脂組成物が、絶縁接着層等を兼ねた放熱用部材として使用されている金属ベース回路基板、又はメタルコア型回路基板、及びそれらの構造体。

(23) (20)または(21)に記載の放熱部材を用いて、発熱性電子部品と放熱金属部材が接着されている放熱金属部材一体型電子部品の構造体。

【発明の効果】

【0013】

本発明の無機質粉体は、球形度・球状化率が低い場合においても、樹脂組成物に高密度で充填可能であるため、樹脂組成物の放熱性能・絶縁破壊強度を向上させることが可能である。

さらに、本発明の無機質粉体を使用した樹脂薄膜シートは、高耐電圧特性が得られるため、熱伝導性、放熱特性、耐電圧特性に優れた樹脂組成物、樹脂薄膜シート、及びそれら

を放熱部材として用いた回路基板及び構造体を提供することが可能になる。

すなわち本発明の無機質粉体は、特定の粒度分布を有し、さらに好ましくは、表面疎水化処理を施した粉体である効果により、球形度が低く樹脂コンパウンド粘度が高くなる粉体であっても樹脂組成物に高充填できるという長所を有し、この無機質粉体を成分の一つとして用いることで、熱伝導性に優れ、且つ、厚さ40～90 μm の薄膜樹脂シート成膜時において、優れた耐電圧特性を示す樹脂組成物が得られる。

従って、本発明の樹脂組成物を使用すれば、放熱特性および耐電圧特性に優れた自動車搭載用回路基板、電子機器搭載用回路基板、電子機器内部の放熱用部材、電子部品用の放熱部材が得られる。この場合、当該電子部品用の放熱部材は、絶縁接着層を兼ねることができるシート状部材であってもよい。

また、本発明の樹脂組成物を使用すれば、絶縁接着層等を兼ねた放熱用部材として、金属ベース回路基板、メタルコア型回路基板、及びそれらの構造体などに使用した場合においても優れた機能性を発揮する。

さらに、これらの放熱部材を用いて、発熱性電子部品と放熱金属部材が接着されている放熱金属部材一体型電子部品の構造体を形成することも可能であり、様々な電子機器類の高性能化に貢献可能である。

【発明を実施するための最良の形態】

【0014】

以下、本発明について詳細に説明する。

本発明の無機質粉体は、特定の粒度分布を有することの効果により、樹脂組成物中への高充填が可能となる。

【0015】

本発明の無機質粉体は、最大粒子径が63 μm 以下、且つ、平均粒子径が4～30 μm 、より好ましくは4～16 μm の範囲であり、最頻径が2～35 μm 、より好ましくは7～20 μm の範囲にあり、頻度粒度分布において多峰性（2以上の極大値あるいはピーク

を有する)の粉体である。すなわち、頻度粒度分布において少なくとも $0.2 \sim 2 \mu\text{m}$ と $2 \sim 63 \mu\text{m}$ の粒度域にそれぞれ極大径を持つ多峰性を有し、球形度は $0.68 \sim 0.95$ で、より好ましくは $0.68 \sim 0.80$ であり、且つ、球状化率は $0.63 \sim 0.95$ で、より好ましくは $0.63 \sim 0.77$ である。

多峰性とすることで、粗大粒子の空隙に微粒子がより多く滑り込み、最密充填が加速されと考えられ、さらにこの様な粒度域に極大値を有することで、最密充填が促進される。

【0016】

$0.2 \sim 2 \mu\text{m}$ の粒度域に含まれる粒子成分としては、無機質粉体を100質量%とした時、粒子径が $2 \mu\text{m}$ 未満の粒子の割合が $0 \sim 20$ 質量%、好ましくは $0 \sim 11$ 質量%で、最頻径が $0.25 \sim 1.5 \mu\text{m}$ の範囲にあり、球形度は $0.5 \sim 0.95$ 、より好ましくは $0.8 \sim 0.85$ であり、球状化率は $0 \sim 0.9$ 、より好ましくは $0 \sim 0.5$ である。

【0017】

$2 \sim 63 \mu\text{m}$ の粒度域に含まれる粒子成分の特徴としては、粒子径が $8 \mu\text{m}$ 以上の粒子の割合が $44 \sim 90$ 質量%、より好ましくは $48 \sim 86$ 質量%であり、球形度は $0.7 \sim 0.9$ 、より好ましくは $0.7 \sim 0.8$ 、更に好ましくは $0.7 \sim 0.78$ であり、球状化率は $0.7 \sim 0.9$ 、より好ましくは $0.7 \sim 0.75$ である。

【0018】

更に $2 \sim 8 \mu\text{m}$ の粒度域に含まれる粒子の割合は $0 \sim 20$ 質量%、より好ましくは $5 \sim 15$ 質量%、または $32 \sim 45$ 質量%、より好ましくは $34 \sim 45$ 質量%である。

無機質粉体をこのような粒度分布となる様に混合等することにより、粉体の球形度が低くても、充填度の高い無機質粉体とすることが可能である。

【0019】

無機質粉体の例としては、酸化アルミニウム、窒化アルミニウム、結晶性シリカ、マグ

ネシア、窒化ホウ素、窒化ケイ素、ベリリア、炭化ケイ素、炭化ホウ素、炭化チタン、ダイヤモンド等が使用可能であるが、好ましくは、熱伝導性（熱伝導率）及び絶縁性（体積固有抵抗値）を両立する無機質粉体を使用する。特に好ましくは、単結晶の場合における熱伝導率が $30\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上で、体積固有抵抗値 $1\times 10^{14}\Omega\cdot\text{cm}$ 以上である無機質粉体を使用する。

例えば、酸化アルミニウム、窒化アルミニウム、マグネシア、窒化ホウ素、ベリリア等が特に好ましい無機質粉体として採用可能である。

【0020】

なお、耐湿性や化学的安定性、使用安全性を考慮すると、本発明の無機質粉体としては、酸化アルミニウム、窒化アルミニウムが最も好ましいが、経済性を考慮した場合には酸化アルミニウムが好ましい。無機質粉体は、単体でも混合体でも使用が可能である。

【0021】

酸化アルミニウム粉体としては、バイヤー法水酸化アルミニウムを焼結、又は電融して得られる酸化アルミニウム粉体を原料として火炎熔融法の球状化工程を経由した球状酸化アルミニウム粉体や、バイヤー法水酸化アルミニウムから製造された低ソーダ微粒酸化アルミニウム粉体、アンモニア明礬熱分解法やアルミニウムアルコキシド加水分解法、アルミニウム水中放電法、或いは他の方法により製造された高純度微粒酸化アルミニウム粉体が好ましいが、特にこれらには限定されない。

窒化アルミニウム粉体としては、直接窒化法や還元窒化法等の方法により製造された窒化アルミニウム粉体が好ましいが、特にこれらには限定されない。

なお、これらの酸化アルミニウムおよび窒化アルミニウムは、単体でも混合体でも使用可能である。さらに、様々な製造方法で得られた酸化アルミニウムおよび窒化アルミニウムを複数組み合わせることも可能である。

【0022】

本発明における無機質粉体は、X線回折分析によって測定される α アルミナ結晶相分率

が30～70質量%、より好ましくは30～55質量%の範囲にある粉体であることが好ましい。

【0023】

更に本発明における無機質粉体は、粒度域2 μm 未満の粉体の α アルミナ結晶相分率が90～99質量%、好ましくは95～99質量%の範囲であり、且つ、粒度域8 μm 以上の粉体の α アルミナ結晶相分率が30～60質量%、好ましくは35～50質量%の範囲である粉体であることが好ましい。

α アルミナ結晶化率をこの様な範囲に調整することで、熱伝導度の高い無機質粉体とすることが可能となる。

【0024】

本発明の無機質粉体の粒度分布は公知の粒度分布測定装置で求めることができる。例えば、レーザー回折／散乱方式の粒度測定装置を用いることが好ましく、粒度分布測定装置としては、例えばマイクロトラック HRA（日機装（株）社製）やSALD-2000J（株）島津製作所製）で測定することができる。尚、水の屈折率は1.33を用い、例えば無機質粉体が酸化アルミニウム粉体である場合には屈折率は1.8を用いる。

【0025】

本発明でいう最大粒子径とは無機質粉体の累積粒度分布において累積値100%粒子径のことであり、平均粒子径とはメジアン径のことであり、無機質粉体の累積粒度分布において累積値50%粒子径のことである。又、極大径とは無機質粉体の頻度粒度分布において極大値を示す粒子径のことであり、最頻径とは極大径のうち最も高い頻度値を示す粒子径のことである。

【0026】

本発明でいう球形度とは平均球形度を示しており、次の方法にて求めることができる。実体顕微鏡や走査型電子顕微鏡等にて撮影した粒子像を画像解析装置などに取り込み、写真から任意の粒子の投影面積（ a ）と輪郭周長 $L_{(a)}$ を計測し、 $L_{(a)}$ と同一の輪郭周長

を持つ真円の面積を (b) とした場合、

$$(b) = \pi \times (L_{(a)} / 2\pi)^2$$

と表すことができる。従って、球形度は以下の式で算出することができる。

$$\text{球形度} = (a) / (b) = (a) \times 4\pi / (L_{(a)})^2$$

このようにして、ある一定個数の粒子の球形度を求め、平均値を平均球形度とする。この際、200個以上の粒子を使用して算出することが好ましい。

【0027】

尚、上記以外の球形度の測定方法としては、粒子像分析装置、例えば「FPIA-2100」（シスメックス(株) 社製）などにて定量的に自動計測された個々の粒子の円形度から、以下の式により換算して球形度を求めることもできる。

$$\text{球形度} = (\text{円形度})^2$$

【0028】

本発明でいう球状化率とは、いわゆる球形度分布における球形度1.0の個数頻度割合である。これは前述の粒子像分析装置などで定量的に自動計測された粒子の円形度の個数頻度積算から求めることができる。

【0029】

尚、上記以外に球状化率を求める方法として、走査型電子顕微鏡にて粉体粒子の大きさに合わせた所定倍率（150～1000倍の任意の倍率）で撮影した1視野中において、5 μm 以上の粒子全個数と未球状粒子個数を計数し、以下の式で算出することもできる。

$$\text{球状化率} = (\text{全個数} - \text{未球状粒子個数}) / \text{全個数}$$

尚、未球状粒子の計数方法については、予め用意した判断標本を用い比較する目視法や公知の画像解析装置を用いた計数法等、何れの方法を用いても良い。

【0030】

無機質粉体における α アルミナ結晶相分率の測定は特に限定されず、公知の粉末X線回折装置で測定することができ、CuK α 線によりスリット0.3mm、スキャンスピード

1度/分、スキャン範囲 $2\theta = 65 \sim 70$ 度の条件でX線回折分析を実施し、得られた $2\theta = 68$. 2度のピーク (α アルミナ) 高さをA、 $2\theta = 67$. 3度のピーク (中間アルミナ) 高さをB、バックグラウンドとして $2\theta = 69$. 5度のベースラインの値をCとして、

α アルミナ結晶相分率＝

$$(A - C) / ((A - C) + (B - C)) \times 100$$

で求めることができる。

【0031】

本発明で用いる無機質粉体はシラン系カップリング剤やチタネート系カップリング剤による表面疎水化処理を実施した粉体であることが好ましく、表面疎水化処理の実施方法としては特に限定されないが、せん断力のある攪拌ミキサー等を用いた乾式法、水系又は有機溶剤系等で分散処理する湿式スラリー法、流体ノズルを用いたスプレー法といった公知の方法が挙げられる。

【0032】

尚、これらの表面疎水化処理実施に際しては、攪拌力を伴う方法の場合には粉体の形状破壊等が生じないように注意を払い、攪拌時間等の条件については表面疎水化処理を施す無機質粉体の粒度、シラン系カップリング剤やチタネート系カップリング剤の種類、及び粉体の目標特性に応じて適宜決定すれば良い。

【0033】

表面疎水化処理に使用するシラン系カップリング剤については特に限定されないが、例えば β -(3, 4-エポキシシクロヘキシル) エチルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン等のエポキシ系シラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N-(β -アミノエチル)- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン等のアミノ系シラン、ウレイドプロピルトリエトキシシランが好ましく、これらは単独、或いは複数で

用いることができる。絶縁層等を構成する樹脂組成物と無機質粉体の接着性、分散性を考慮して選定すれば良い。

【0034】

チタネート系カップリング剤についても同様に特に限定されないが、絶縁層等を構成する樹脂組成物と無機質粉体の接着性、分散性を考慮して選定すれば良い。

【0035】

本発明の樹脂化合物のマトリックスとして用いられる有機重合体組成物の具体例としては、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、シリコーン樹脂、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレンなどのポリオレフィン、メラミン樹脂、ユリア樹脂、フェノール樹脂、ポリエチレンテレフタレート、不飽和ポリエステルなどのポリエステル、ナイロン6、ナイロン66、アラミドなどのポリアミド、ポリブタジエン、ポリエステル、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリエチレンオキサイド、ポリエチレングリコール、ポリビニルアルコール、ビニルアセタール樹脂、ポリアセテート、ABS樹脂、酢酸ビニル樹脂、セルロースおよびレーヨンその他のセルロース誘導体、ポリウレタン、ポリカーボネート、尿素樹脂、フッ素樹脂、ポリフッ化ビニリデン、セルロイド、キチン、澱粉シート、アクリル樹脂、アルキド樹脂等といった公知の樹脂組成物、及びこれらの混合物が好ましいが、特にこれらに限定されない。尚、これらは単独、或いは複数で用いることも可能である。

【0036】

この中で特に、金属板や金属箔と接着力が比較的強く、無機質粉体との親和性が比較的高いとされるエポキシ樹脂やポリイミド樹脂を用いることがさらに好ましい。また、前述樹脂組成物には、必要に応じて硬化促進剤等を用いることもできる。

【0037】

硬化促進剤については、使用する樹脂組成物と反応して硬化させるものであれば特に限定されないが、例えばエポキシ樹脂と反応して硬化させる公知の促進剤としては、フェノール、クレゾール、イミダゾール、キシレノール、レゾルシノール、クロロフェノール、

トーチルフェノール、ノニルフェノール、イソプロピルフェノール、ビスフェノールAやビスフェノールS等のビスフェノール化合物、無水マレイン酸等の酸無水物等が好ましく、使用する樹脂組成物との反応性を考慮して選定すれば良い。

【0038】

本発明の樹脂化合物の成膜方法は特に制限されるものではないが、ドクターブレード法や、樹脂コンパウンド粘度によっては押出し法、プレス法、カレンダーロール法等を用いることが好ましい。

【0039】

本発明の無機質粉体の流動性を示す指標である樹脂コンパウンド粘度の評価、及び、粉体を充填し薄膜シートに成形した樹脂組成物の耐電圧特性評価は、実施例に記載する評価方法により行うことができる。

【0040】

本発明の無機質粉体は、特定の粒度分布を有し、さらに好ましくは、表面疎水化処理を施した粉体である効果により、球形度が低く樹脂コンパウンド粘度が高くなる粉体であっても樹脂組成物に高充填できるという長所を有し、この無機質粉体を成分の一つとして用いることで、熱伝導性に優れ、且つ、厚さ40～90 μm の薄膜樹脂シート成膜時において、優れた耐電圧特性を示す樹脂組成物が得られる。

さらに、本発明の無機粉体を使用した樹脂組成物を使用すれば、公知の方法により自動車搭載用回路基板、電子機器搭載用回路基板、電子機器内部の放熱用部材、電子部品用の放熱部材とすることが可能となる。さらに、当該電子部品用の放熱部材が、絶縁接着層を兼ねることができるシート状部材であってもよく、金属ベース回路基板、又はメタルコア型回路基板、及びそれらの構造体とすることも可能である（例えば、電子技術1985年12月臨時増刊号P.39～50、サーキットテクノロジーP.96-103, Vol. 5, No. 2 (1990)）。

また、公知の方法を採用すれば、発熱性電子部品と放熱金属部材が接着されている放熱金属部材一体型電子部品の構造体とすることも可能である。

【実施例】

【0041】

以下、実施例、比較例によって本発明について具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0042】

(実施例1～5)

シランカップリング剤としてγ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン (A-187; 日本ユニカー社製) を用いて、予め表面疎水化処理を施した後、粒度分布条件を表1の如く調整した酸化アルミニウム粉体A、B、C、Dを準備した。

所定条件にて樹脂組成物に混練充填後、ドクターブレード法により、乾燥硬化後の膜厚が約60 μm 以下になるように成膜した。

所定の乾燥条件にて乾燥硬化した薄膜樹脂シートについて、各々の絶縁破壊強度を測定した。絶縁破壊強度はJIS C2110に規定された絶縁破壊電圧試験方法に基づき測定した。表1に記載の酸化アルミニウム粉体について樹脂コンパウンド粘度評価としてエポキシ樹脂粘度を測定した。

表1に示した結果の通り、球形度が0.81未満の低球形度粉体で、エポキシ樹脂粘度が5000P以上になるほど粘性が高くなったが、膜厚44～53 μm において絶縁破壊強度39～78kV/mmを得ることができた。

【0043】

尚、薄膜樹脂シート作成における粉体と樹脂組成物の混練・充填条件、成膜・乾燥条件、シート耐電圧測定方法、及びエポキシ樹脂粘度測定方法を以下に示す。

【0044】

(1) 粉体と樹脂組成物の混練・充填条件

粉体 : 25g

樹脂組成物: エポキシ樹脂化合物 10g

硬化剤 : イミダゾール 0.1g

上記混合物を公転自転混和方式脱泡混練器（（株）シンキー社製AR-250）を用いて、混練時間5分、脱泡時間1分の条件で混練する。

【0045】

(2) 成膜・乾燥条件

前記混練スラリーを自動フィルム塗布器（（有）セプロ社製）とブレードエッジ（75 μm ）を用いて、ドクターブレード法にて成膜後、直ちに定温恒温乾燥器にて40～50℃で30以上乾燥後、120℃で15分、180℃で30分、の3段階に分けて乾燥する。

【0046】

(3) 絶縁破壊強度測定方法

乾燥して得た薄膜樹脂シートを、耐電圧試験器（菊水電子工業（株）製TOS-8870A型）を用い、印加電圧AC5kVで、JIS C2110に記載の絶縁破壊電圧試験方法に準拠した方法にて測定した。

【0047】

(4) エポキシ樹脂粘度測定方法

粉体250質量部、エポキシ樹脂（旭化成（株）社製エポキシ樹脂AER-250）100質量部を混練器にて混練し、恒温水槽にて25℃に調整した後、BH型粘度計にて粘度を測定した。

【0048】

(比較例1～4)

表2に記載の酸化アルミニウム粉体E、F、G、Hを、実施例と同様の手順、条件にて樹脂組成物に充填後、薄膜樹脂シートを成膜して絶縁破壊強度を測定すると共に、粉体各々についてエポキシ樹脂粘度を測定した。

表2に示した結果の通り、何れも膜厚47～50 μm で絶縁破壊強度28～32 kV/

mmであった。

【0049】

(参考例1)

酸化アルミニウム粉体が非常に高い球形度を有する場合の例として、表3に記載の酸化アルミニウム粉体 I (アドマテックス社製、球状酸化アルミニウム「アドマファインAO-502」を20質量%、「アドマファインAO-509」を80質量%の割合で混合した粉体)を準備した。

実施例と同様の方法で薄膜樹脂シートを成膜した後、絶縁破壊強度を測定し、粉体についてエポキシ樹脂粘度を測定した。

表3に示した通り、市販されている高球形度の粉体の場合には、エポキシ樹脂粘度は1080Pと低く、膜厚55 μ mで絶縁破壊強度39kV/mmが得られることを確認した。

【表1】

粉体名			実施例1	実施例2	実施例3	実施例4
			A	B	C	D
8 μ m以上の粒子の割合	mass%		52.1	52.1	55.2	55.2
"	球形度	-	0.78	0.78	0.78	0.78
"	球状化率	-	0.75	0.75	0.75	0.75
"	α アルミナ結晶分率	mass%	40	40	40	40
2 μ m未満の粒子の割合	mass%		10.3	5.4	5.3	10.2
"	球形度	-	0.70	0.70	0.70	0.70
"	球状化率	-	0.10	0.10	0.10	0.10
"	α アルミナ結晶分率	mass%	99	99	99	99
2 μ m未満の領域での最頻径	μ m		0.34	0.34	0.34	0.34
2~8 μ mの粒子の割合	mass%		37.6	42.5	39.5	34.6
分布の峰数			2	2	2	2
最大粒子径	μ m		62.2	62.2	62.2	62.2
平均粒子径	μ m		8.2	9.5	9.3	9.2
最頻径	μ m		14.27	14.27	14.27	14.27
球形度(平均)	-		0.79	0.78	0.78	0.77
球状化率(平均)	-		0.69	0.68	0.72	0.68
α アルミナ結晶分率	mass%		43	44	41	46
シート膜厚	μ m		47	48	44	53
絶縁破壊強度	kV/mm		45	39	41	78
エポキシ樹脂粘度	P		>5000	>5000	>5000	>5000

【表2】

粉体名			比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
			E	F	G	H
8 μ m以上の粒子の	割合	mass%	42.9	42.9	49.0	49.0
"	球形度	-	0.78	0.78	0.78	0.78
"	球状化率	-	0.75	0.75	0.75	0.75
"	α アルミナ結晶分率	mass%	40	40	40	40
2 μ m未満の粒子の	割合	mass%	20.2	10.5	20.1	0.6
"	球形度	-	0.70	0.70	0.70	0.95
"	球状化率	-	0.10	0.10	0.10	0.90
"	α アルミナ結晶分率	mass%	99	99	99	-
2 μ m未満の領域での最頻径		μ m	0.34	0.34	0.34	-
2~8 μ mの粒子の割合		mass%	36.9	48.6	30.9	50.4
分布の峰数			2	2	2	1
最大粒子径		μ m	62.2	62.2	62.2	62.2
平均粒子径		μ m	7.3	7.6	7.9	8.5
最頻径		μ m	14.27	14.27	14.27	14.27
球形度(平均)		-	0.78	0.81	0.76	0.81
球状化率(平均)		-	0.62	0.71	0.60	0.78
α アルミナ結晶分率		mass%	49	40	52	34
シート膜厚		μ m	50	50	49	47
絶縁破壊強度		kV/mm	28	29	30	32
エポキシ樹脂粘度		P	>5000	4330	>5000	3340

【表3】

粉体名			参考例1
I			
8 μm 以上の粒子の	割合	mass%	50.8
"	球形度	-	0.95
"	球状化率	-	0.95
"	α アルミナ結晶分率	mass%	38
2 μm 未満の粒子の	割合	mass%	33.0
"	球形度	-	0.95
"	球状化率	-	0.95
"	α アルミナ結晶分率	mass%	5
2 μm 未満の領域での最頻径		μm	0.34
2~8 μm の粒子の割合		mass%	16.2
分布の峰数			2
最大粒子径		μm	88.0
平均粒子径		μm	9.1
最頻径		μm	20.17
球形度(平均)		-	0.95
球状化率(平均)		-	0.95
α アルミナ結晶分率		mass%	31
シート膜厚		μm	55
絶縁破壊強度		kV/mm	39
エポキシ樹脂粘度		P	1020

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCTNOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

To:

OHIE, Kunihisa
Ohie Patent Office
Selva-Ningyosho 6F, 14-6, Nihonbashi-Ningyocho
2-chome, Chuo-Ku Tokyo 103-0013
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 19 March 2005 (19.03.2005)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference SDF-5278PCT	
International application No. PCT/JP05/000431	
International publication date (day/month/year)	
	International filing date (day/month/year) 07 January 2005 (07.01.2005)
	Priority date (day/month/year) 08 January 2004 (08.01.2004)
Applicant SHOWA DENKO K.K. et al	

- By means of this Form, which replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents, the applicant is hereby notified of the date of receipt by the International Bureau of the priority document(s) relating to all earlier application(s) whose priority is claimed. Unless otherwise indicated by the letters "NR", in the right-hand column or by an asterisk appearing next to a date of receipt, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- (If applicable)* The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which, on the date of mailing of this Form, had not yet been received by the International Bureau under Rule 17.1(a) or (b). Where, under Rule 17.1(a), the priority document must be submitted by the applicant to the receiving Office or the International Bureau, but the applicant fails to submit the priority document within the applicable time limit under that Rule, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- (If applicable)* An asterisk (*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b) (the priority document was received after the time limit prescribed in Rule 17.1(a) or the request to prepare and transmit the priority document was not submitted to the receiving Office after the applicable time limit under Rule 17.1(b)). Even though the priority document was not furnished in compliance with Rule 17.1(a) or (b), the International Bureau will nevertheless transmit a copy of the document to the designated Offices, for their consideration. In case such a copy is not accepted by the designated Office as the priority document, Rule 17.1(c) provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
08 January 2004 (08.01.2004)	2004-3377	JP	27 January 2005 (27.01.2005)
13 January 2004 (13.01.2004)	60/535,806	US	17 March 2005 (17.03.2005)
23 March 2004 (23.03.2004)	2004-85269	JP	27 January 2005 (27.01.2005)

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Taylor Sean

Facsimile No. +41 22 740 14 35

Facsimile No. +41 22 338 90 90
Telephone No. +41 22 338 9811